

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

28. 1. 2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日  
Date of Application: 2003年 2月 3日

出願番号  
Application Number: 特願2003-026077

[ST. 10/C]: [JP2003-026077]

出願人  
Applicant(s): TDK株式会社

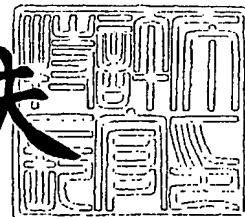
RECEIVED
11 MAR 2004
WIPO PCT

PRIORITY DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2004年 2月 26日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今井康夫



【書類名】 特許願  
【整理番号】 P-04786  
【提出日】 平成15年 2月 3日  
【あて先】 特許庁長官 殿  
【国際特許分類】 H01F 1/00  
【発明者】  
【住所又は居所】 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティーディーケイ株式会社内  
【氏名】 坂本 篤司  
【発明者】  
【住所又は居所】 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティーディーケイ株式会社内  
【氏名】 中根 誠  
【発明者】  
【住所又は居所】 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティーディーケイ株式会社内  
【氏名】 中村 英樹  
【発明者】  
【住所又は居所】 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティーディーケイ株式会社内  
【氏名】 福野 亮  
【特許出願人】  
【識別番号】 000003067  
【氏名又は名称】 ティーディーケイ株式会社  
【代理人】  
【識別番号】 100100077  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 大場 充

**【手数料の表示】****【予納台帳番号】** 085823**【納付金額】** 21,000円**【提出物件の目録】****【物件名】** 明細書 1**【物件名】** 図面 1**【物件名】** 要約書 1**【プルーフの要否】** 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 硬質磁性組成物

【特許請求の範囲】

【請求項1】 RとT（RはYを含む希土類元素の1種又は2種以上、TはFe及びTiを必須とする遷移金属元素）のモル比が1：1.2近傍である金属間化合物の単相組織からなり、

Si及びA（AはN及びCの1種又は2種）が侵入型元素として前記金属間化合物の結晶の格子間に存在することを特徴とする硬質磁性組成物。

【請求項2】 前記金属間化合物における結晶格子のc軸の格子定数及びa軸の格子定数の比をc1/a1とし、ThMn<sub>12</sub>型化合物における結晶格子のc軸の格子定数及びa軸の格子定数の比をc2/a2すると、c1/a1>c2/a2であることを特徴とする請求項1に記載の硬質磁性組成物。

【請求項3】 Siが結晶格子を異方的に収縮させ、かつAが結晶格子を等方的に膨張させることによりc1/a2>c2/a2を得ることを特徴とする請求項2に記載の硬質磁性組成物。

【請求項4】 RとTのモル比が1：1.0～1：1.2.5であることを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の硬質磁性組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、スピーカやモータなど磁界を必要とする機器に用いられる希土類永久磁石材料として好適な硬質磁性組成物に関する。

【0002】

【従来の技術】

希土類磁石の中でもR-T-B系希土類永久磁石は、磁気特性に優れていること、主成分であるNdが資源的に豊富で比較的安価であることから、スピーカやモータなどの電気機器各種用途に用いられている。

ところが、近年、電気機器の小型化の要求が一層高まってきており、新しい永久磁石材料の開発が進められている。そのなかで、体心正方晶もしくはThMn

12型結晶構造を有する希土類一鉄系磁石材料が、例えば特開昭63-273303号公報、特開平4-241402号公報、特開平5-65603号公報及び特開2000-114017号公報に報告されている。

特開昭63-273303号公報は、組成式 $R_xTi_yAzFe_aCo_b$ （式中RはYを含む希土類元素、AはB、C、Al、Si、P、Ga、Ge、Sn、S、Nの各々1種以上であり、重量百分率でxは12～30%、yは4～10%、zは0.1～8%、aは5.5～8.5%、bは3.4%以下である）で示される希土類永久磁石を開示している。特開昭63-273303号公報において、A元素は、原子間に入りFe間距離を好ましい方向に変化させるものであることが述べられている。

#### 【0003】

特開平4-241402号公報は、組成式 $R_xMyAzFe_{100-x-y}-z$ （式中RはYを含む希土類元素から選択された少なくとも1種の元素、MはSi、Cr、V、Mo、W、Ti、Zr、Hf及びAlから選択された少なくとも1種の元素、AはN及びCから選択された少なくとも1種の元素であり、原子%でxが4～20%、yが20%以下、zが0.001～1.6%である）で示され、主相がThMn<sub>12</sub>型結晶構造を有する永久磁石を開示している。特開平4-241402号公報には、M元素（Si、Ti等）を添加することにより、安定したThMn<sub>12</sub>型の結晶構造を有する希土類鉄系の正方晶化合物を形成できることが開示されている。また、A元素（C、N）はキュリー温度の向上に有効であることが開示されている。

#### 【0004】

特開平5-65603号公報は、RをY、Th及びすべてのランタノイド元素からなる群の中から選ばれた1種又は2種以上の元素の組合せ、XをN（窒素）もしくはB（硼素）もしくはC（炭素）又はこれらの元素の組合せとするとき、原子百分率で、R：3～30%、X：0.3～50%を含み、残部が実質的にFeから成り、主相が体心正方晶構造を有する鉄一希土類系永久磁石材料を開示している。特開平5-65603号公報は、Feの一部を0.5～30%のM元素（Ti、Cr、V、Zr、Nb、Al、Mo、Mn、Hf、Ta、W、Mg、S

i, Sn, Ge, Gaからなる群の中から選ばれた1種又は2種以上の元素の組合せ)で置換することもさらに提案している。

### 【0005】

また、特開2000-114017号公報は、一般式  $(R_{1-u}M_u)(Fe_{1-v-w}Co_vT_w)_x A_y$  (式中のR, M, T, Aは、それぞれR:Yを含む希土類元素から選ばれる少なくとも1つの元素、M:Ti, Nbから選ばれる少なくとも1つの元素、T:Ni, Cu, Sn, V, Ta, Cr, Mo, W, Mnから選ばれる少なくとも1つの元素、A:Si, Ge, Al, Gaから選ばれる少なくとも1つの元素、であり、u, v, w, x及びyは、それぞれ0. 1 ≤ u ≤ 0.7、0 ≤ v ≤ 0.8、0 ≤ w ≤ 0.1、5 ≤ x ≤ 12、0.1 ≤ y ≤ 1.5、である)にて表わされ、主たる硬磁性相がThMn<sub>12</sub>型結晶構造であることを特徴とする永久磁石材料を開示している。特開2000-114017号公報では、M元素(Ti, Nb)でR元素を置換することによりThMn<sub>12</sub>型結晶構造を有する相(以下、ThMn<sub>12</sub>相ということがある)の安定化元素であるA元素(Si, Geなど)の量を低減できることが述べられている。

### 【0006】

#### 【特許文献1】

特開昭63-273303号公報(特許請求の範囲、第3頁)

#### 【特許文献2】

特開平4-241402号公報(特許請求の範囲、第2頁)

#### 【特許文献3】

特開平5-65603号公報(特許請求の範囲、第4頁)

#### 【特許文献4】

特開2000-114017号公報(特許請求の範囲、第5頁)

### 【0007】

#### 【発明が解決しようとする課題】

希土類永久磁石には、高特性であることが要求される一方、低成本であることも要求される。希土類永久磁石を構成する希土類元素の中で、NdはSmに比べて安価であることから、高価なSmと比べて安価なNdが希土類元素の主体を

なすことが望ましい。ところが、Ndを用いるとThMn<sub>12</sub>相の生成が困難であり、その作製に高温かつ長時間の熱処理を必要とする。例えば、前述の特開平5-65603号公報においては900℃で7日間の焼鈍を施しており、また、特開平4-241402号公報、特開2000-114017号公報においては一部の例外を除いて希土類元素としてSmのみを用いている。

そこで本発明は、高温かつ長時間の熱処理等を施すことなく高い磁化と異方性を有する硬質磁性組成物を提供することを目的とする。

### 【0008】

#### 【課題を解決するための手段】

本発明者は、上記課題を解決するために、R（Yを含む希土類元素の1種又は2種以上）とT（FeとTiを必須とする遷移金属元素）からなり、RとTのモル比が1:12近傍の組成を有する金属間化合物について検討を行った。その結果、この金属間化合物は、SiとNがともに侵入型元素として存在する場合に、高温かつ長時間の熱処理等を施すことなく、飽和磁化及び異方性磁界がともに高くなることを知見した。この過程で、SiとNは侵入型元素である点で共通するものの、侵入による結晶格子へ与える影響に差異があることを確認した。詳しくは後述するが、Siは結晶格子を収縮させる作用を有し、特に結晶格子のa軸を収縮させるのに対し、Nは結晶格子を等方的に膨張させる作用を有している。その結果、従来知られているThMn<sub>12</sub>型化合物の結晶格子のc軸とa軸の軸比（以下、c/aと記す）よりも、本発明者等による新たな金属間化合物のc/aは大きな値を有している。なお、ASTM（American Society For Testing and Materials）に基づくThMn<sub>12</sub>型化合物のc/aは0.558である。

### 【0009】

本発明は以上の知見に基づいてなされたものであり、RとT（RはYを含む希土類元素の1種又は2種以上、TはFe及びTiを必須とする遷移金属元素）のモル比が1:12近傍である金属間化合物の単相組織からなり、Si及びA（AはN及びCの1種又は2種）が侵入型元素として前記金属間化合物の結晶の格子間に存在することを特徴とする硬質磁性組成物である。

本発明の硬質磁性組成物において、RとTのモル比が1:10～1:12.5

であることが望ましい。

また、本発明の硬質磁性組成物において、前記金属間化合物における結晶格子のc軸の格子定数及びa軸の格子定数の比をc<sub>1</sub>/a<sub>1</sub>とし、ThMn<sub>12</sub>型化合物における結晶格子のc軸の格子定数及びa軸の格子定数の比をc<sub>2</sub>/a<sub>2</sub>すると、c<sub>1</sub>/a<sub>1</sub>>c<sub>2</sub>/a<sub>2</sub>とすることができる。このとき、Siが結晶格子を異方的に収縮させ、かつAが結晶格子を等方的に膨張させることによりc<sub>1</sub>/a<sub>1</sub>>c<sub>2</sub>/a<sub>2</sub>を得ることができる。なお、c<sub>2</sub>/a<sub>2</sub>は、上記ASTMに基づいて設定されるものとする。

### 【0010】

#### 【発明の実施の形態】

以下、本発明をより具体的に説明する。

#### ＜結晶構造＞

はじめに本発明による硬質磁性組成物の結晶構造について説明する。

本発明の硬質磁性組成物は、R（Yを含む希土類元素の1種又は2種以上）とT（FeとTiを必須とする遷移金属元素）からなり、RとTのモル比が1:1.2近傍の組成を有する金属間化合物から構成される。この金属間化合物の結晶の格子間には、Siが侵入型元素として存在する。また、この結晶格子にはNも侵入型元素として存在する。なお、この金属間化合物は正方晶の化合物と解されることから、以後、正方晶化合物ということにする。

### 【0011】

上述したように、SiとNはともに結晶の格子間に存在して磁気特性を改善する。ところが、Siは結晶格子を収縮させ、Nは結晶格子を膨張させる。このように、SiとNとはその作用が異なっている。以下、この点について言及する。

図1は、Nd<sub>(Ti8.2Fe91.8)11.9Si<sub>z</sub></sub>及びNd<sub>(Ti8.2Fe91.8)11.9Si<sub>z</sub>N1.5</sub>の組成を有する硬質磁性組成物における格子定数（c軸、a軸及びc軸/a軸）とSi量（z）の関係を示すグラフである。なお、図1に示される硬質磁性組成物は、後述する実施例に開示されたものである。

### 【0012】

図1において、Siが添加されてもc軸の格子定数に大きな変化はみられない

。ところが、 $a$ 軸については、 $S_i$ を添加することにより格子定数が顕著に小さくなることがわかる。つまり、 $S_i$ は結晶の格子間に存在し、かつ結晶格子を異方的に収縮させる特徴を有している。次に、図1において、 $N$ を添加することにより、 $c$ 軸及び $a$ 軸とともにその格子定数が大きくなることがわかる。つまり、 $N$ は結晶の格子間に存在し、かつ結晶格子を等方的に膨張させる。以上のようにして結晶格子を収縮又は膨張させることにより飽和磁化、キュリー温度及び異方性磁界が向上する。なお、 $S_i$ による結晶格子を異方的に収縮させる作用が $N$ を添加しても変わらないことも図1からわかる。そして、 $S_i$ はその存在によって結晶格子が収縮するが、 $N$ との共存によって異方性化向上の効果が顕著となるとともに、単相組織の生成を容易にする。

なお、図1において、「ASTM」の符号が付されたプロットは、ASTMに記載された $T_hMn_{12}$ 型化合物の $c$ 軸の格子定数、 $a$ 軸の格子定数及び $c$ 軸の格子定数/ $a$ 軸の格子定数を示している。 $N_d$  ( $T_i 8.2 F_e 91.8$ )  $11.9 S_{iz} z$  がゼロの組成物の格子定数が、ASTMに記載された $T_hMn_{12}$ 型化合物の格子定数に一致していることがわかる。

### 【0013】

$S_i$ が結晶の格子間に存在することは、以下のことにより実証される。上記 $N_d$  ( $T_i 8.2 F_e 91.8$ )  $11.9 S_{iz} z$  がゼロ、つまり $S_i$ を含まない組成物と含む組成物についてX線回折法による確認を行ったところ、両者ともに得られる回折ピークの基本形態に変化が見られず、しかも $S_i$ もしくは上記組成物の構成元素と $S_i$ の化合物のピーク及び $\alpha - Fe$ のピークが確認されないこと、さらに $S_i$ 量の増加にともなって $a$ 軸の格子定数が連続的に小さくなることから、 $S_i$ が結晶の格子間に存在すると認められる。

### 【0014】

また、本発明において、 $N$ 原子は結晶の格子間に存在し、 $c$ 軸、 $a$ 軸ともほぼ同比率で膨張させる。しかし、 $S_i$ は結晶の格子間に存在するが、 $a$ 軸のみを縮めていることから、結晶格子内の特定の場所に存在することが推定される。その存在位置は確定できないが、 $T_hMn_{12}$ 型化合物とは異なるピークをX線回折にて示すことから、結晶の格子間において特定の位置を占有していると考えられる。

またS iと遷移金属との間で共有結合が生じていると推察すれば、格子が縮むことの説明がつくであろう。

### 【0015】

次に、本発明の硬質磁性組成物における望ましい組成範囲を説明する。

#### <R（希土類元素）>

Rは高い磁気異方性を得るために必須な元素である。一般的にはT h M n<sub>12</sub>相を生成するためにはS mを用いるのが有利であることが知られているが、本発明ではコスト的メリットを得るためにRの50モル%以上をN dで占めることが望ましい。ただし、N dのほかにYを含む希土類元素を含むことを本発明は許容する。その場合、Y, L a, C e, P r, S mの1種又は2種以上をN dとともに含むことが好ましい。この中でP rはN dとほぼ同等の性質を示すことから、特性においてもN dと同等の値が得られるため特に好ましい。本発明によれば、Rに占めるN dの割合が70モル%以上、あるいは90モル%以上と高い場合であっても正方晶化合物からなる単相組織を得ることができる。後述する実施例に示すように、本発明によれば、RがN dのみ、つまりRの100%をN dが占める場合であっても、正方晶化合物の単相組織を得ることができる。

### 【0016】

#### <S i>

S iは侵入型元素として機能するが、結晶の格子間に侵入して結晶格子を収縮させる効果を持つ。S iの量が0.2未満（モル比、以下同様）になるとM n<sub>2</sub>T h<sub>17</sub>型結晶構造を有する相（以下、M n<sub>2</sub>T h<sub>17</sub>相）が析出し、2.7を超えると $\alpha$ -F eが析出する傾向にある。したがって、本発明ではS iの量であるzを0.2～2.7の範囲とすることを推奨する。望ましいS i量（z）は0.2～2.3、さらに望ましいS i量（z）は0.2～1.0である。なお、S iについては、T（F e及びT iを必須とする遷移金属元素）、Rとの関係で（Tのモル比+S iのモル比）／（Rのモル比）>12を満足するように含まれることが望ましいが、この点については後述する。

### 【0017】

#### <T i>

TiはFeを置換する元素であるが、Si量との関係でTi量(y)の下限を設定することが必要である。つまり、Ti量(y)が(8.3-1.7×z(Si量))未満になると $\alpha$ -Fe及びMn<sub>2</sub>Th<sub>17</sub>相が析出する。また、Ti量(y)が12を超えると飽和磁化( $\sigma_s$ )の減少が著しくなる。したがって本発明では、Ti量(y)を(8.3-1.7×z(Si量))～12とする。望ましいTi量(y)は(8.3-1.7×z(Si量))～10、さらに望ましいTi量(y)は(8.3-1.7×z(Si量))～9.0である。

また、Fe量とTi量の和(x)が、10未満では飽和磁化( $\sigma_s$ )及び異方性磁界( $H_A$ )とともに低く、また、12.5を超える $\alpha$ -Feが析出する。したがって、本発明ではFe量とTi量の和(x)を10～12.5とする。望ましいxは11～12.5である。

#### 【0018】

<A(N(窒素)及びC(炭素)の1種又は2種)>

Aは結晶の格子間に侵入することによって格子を等方的に拡大させ、磁気特性の改善に有効な元素である。しかし、A量(v)が3.0を超えると $\alpha$ -Feの析出が見られる。また、0.1以下では磁気特性の改善効果を十分得ることができない。したがって、本発明ではA量(v)を0.1～3.0とする。望ましいA量(v)は0.3～2.5、さらに望ましいA量(v)は1.0～2.5である。

#### 【0019】

<T>

本発明による硬質磁性組成物は、上記元素以外を実質的にFeとするが、Feの一部をCoで置換することが有効である。Coを添加することにより、飽和磁化( $\sigma_s$ )及び異方性磁界( $H_A$ )が増大する。Coの量は、30以下のモル比で添加するのが望ましく、5～20の範囲とするのがより望ましい。なお、Coの添加は必須ではない。

#### 【0020】

<(Tのモル比+Siのモル比)/(Rのモル比)>12>

Fe、Co、Ti及びSiの個々の含有量は前述したとおりであるが、本発明

の硬質磁性組成物を単相組織とする上で、(Tのモル比+Siのモル比)／(Rのモル比) > 1.2 の条件を満足することが重要である。上記条件を満たさない場合には飽和磁化 ( $\sigma_s$ ) が低い。Tのモル比は、TがFe及びTiからなるときはFeのモル比+Tiのモル比、さらにCoを含むときはFeのモル比+Coのモル比+Tiのモル比となる。

### 【0021】

本発明による硬質磁性組成物の製造方法は公知の製造方法により得ることができる。特に、侵入型元素であるNについては、Nをもともと含む原料を用いることもできるが、N以外の元素を含む組成物を製造した後に、Nを含む気体又は液体中で処理（窒化）することによりNを侵入させることが望ましい。Nを侵入させることのできる気体としては、N<sub>2</sub>ガス、N<sub>2</sub>+H<sub>2</sub>混合ガス、NH<sub>3</sub>ガス、これらの混合ガスを用いることができる。窒化処理の温度は200～1000℃、望ましくは350～700℃とし、窒化処理時間は0.2～200時間の範囲で適宜選択すればよい。また、Cを侵入させる処理（炭化処理）についても同様で、Cをもともと含む原料を用いることもできるし、C以外の元素を含む組成物を製造した後に、Cを含む気体又は液体中で加熱処理することもできる。あるいは、Cを含む固体とともに加熱処理することによりCを侵入させることもできる。Cを侵入させることのできる気体としてはCH<sub>4</sub>、C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>等が掲げられる。また、Cを含む固体としては、カーボンブラックを用いることができる。これらによる炭化においても、窒化と同様の温度、処理時間の範囲内で適宜条件を設定することができる。

### 【0022】

以下、本発明を具体的な実施例に基づいて説明する。

#### (第1実施例)

高純度のNd、Fe、Ti、Siメタルを原料に用い、合金組成としてNd-(Ti 8.2 Fe 91.8) 11.9-Si<sub>z</sub>の組成、及びNd-(Ti 8.3 Fe 91.7) 12-Si<sub>z</sub>の組成となるように、Ar雰囲気中でのアーケ溶解法により試料を作製した。続いてこの合金をスタンプミルにて粉碎し目の開きが38μmのふるいを通して後ろに、430～520℃の温度で100時間、窒素雰囲気中で保持する熱処

理（窒化）を行った。熱処理後の各試料について、化学組成分析、構成される相の同定を行うとともに、飽和磁化 ( $\sigma_s$ ) 及び異方性磁界 ( $H_A$ ) の測定を行った。その結果を表1に示す。

#### 【0023】

なお、相構成の同定は、X線回折法及び熱磁気曲線の測定に基づいて行った。X線回折はCu管球を用い15kWの出力にて測定を行ったチャートに本発明の正方晶化合物に対応するピークとそれ以外の相に対応するピークの有無を確認した。また、熱磁気曲線は2kOeの磁場を印加して測定を行い、Tc（キュリー温度）の発現状況を確認した。なお、本発明において、単相組織であるとは、以上のX線回折法により正方晶化合物以外の相のピークが確認されず、かつ熱磁気曲線の測定により正方晶化合物以外の相に対応するTcが確認されないとともに、当該Tcよりも高温側で残存する磁化が0.05以下であることをいい、検出されない程度の不可避不純物及び未反応物等が含まれていてもかまわない。例えば、アーク溶解では溶解中の熱均一度が不十分であり、わずかな未反応相（例えばNd、 $\alpha$ -Fe等）が残存することがあり、また試料ホルダーからのCu等が不可避不純物として含まれることがあるが、X線回折及び熱磁気曲線の測定にて検出されない限りこれを考慮しない。

#### 【0024】

また、飽和磁化 ( $\sigma_s$ ) 及び異方性磁界 ( $H_A$ ) は、VSM（振動式磁力計）を用いて最大印加磁界20kOeで測定した磁化容易軸方向の磁化曲線及び磁化困難軸方向の磁化曲線に基づいて求めている。ただし、測定の便宜上、飽和磁化 ( $\sigma_s$ ) は磁化容易軸方向の磁化曲線上で最大の磁化の値とした。また、異方性磁界 ( $H_A$ ) は、磁化困難軸方向の磁化曲線上の10kOeにおける接線が、飽和磁化 ( $\sigma_s$ ) の値と交差する磁界の値で定義した。

#### 【0025】

【表1】

	Ti (y)	Fe+Ti (x)	Si (z)	N (v)	$\sigma_s$ [emu/g]	$H_A$ [kOe]	c/a	Tc (°C)	相構成
実施例1	8.2	11.9	0.25	1.5	144.1	51.7	0.559	441	単相
実施例2			0.50		143.5	52.1	0.561	438	
実施例3			1.00		138.8	55.1	0.562	433	
実施例4			1.50		138.0	58.1	0.562	433	
実施例5			2.00		135.9	59.0	0.562	431	
実施例6			2.50		129.5	40.7	0.561	467	
実施例7	8.3	12.0	0.50	1.0	137.0	44.1	0.560	426	$\alpha$ -Fe 析出
実施例8			1.50	1.1	132.8	49.7	0.561	412	
比較例1	8.2	11.9	—	1.5	138.2	28.1	0.552	442	
比較例2			1.50	—	115.3	20.2	—	269	
比較例3			3.00	1.5	123.2	27.1	0.556	467	
比較例4	8.3	12.0	3.05	0.7	125.1	21.5	—	389	

## 【0026】

表1に示すように、Siが添加されていない比較例1の0.552に比べてc/aが大きい実施例1～6は磁気特性、特に異方性磁界( $H_A$ )が向上することがわかる。ただし、図1をも参照すれば、a軸の格子定数が所定の範囲まで小さくなるにしたがって異方性磁界( $H_A$ )は向上する一方、飽和磁化( $\sigma_s$ )は低下する傾向にあることがわかる。また、Si量が多い比較例3は、 $\alpha$ -Feが析出するとともに、飽和磁化( $\sigma_s$ )及び異方性磁界( $H_A$ )がともに低下する。さらに、Nの添加されていない比較例2は飽和磁化( $\sigma_s$ )が低い。なお、Nを含むがSiを含まない比較例1及びSiを含むがNを含まない比較例2の飽和磁化( $\sigma_s$ )及び異方性磁界( $H_A$ )のレベルからすると、本発明による実施例1～6の飽和磁化( $\sigma_s$ )及び異方性磁界( $H_A$ )は予想の範囲を超えた高い値を示しており、Si及びNの両者を兼備することにより磁気特性が顕著に向上することがわかる。

## 【0027】

図2は表1の実施例7、8及び比較例4の組成物の熱磁気曲線を示している。実施例6及び7は430°C近傍にTcが存在することがわかるが、それ以外のTcを確認することができない。したがって、実施例7及び8は、正方晶化合物の

単相組織であるものと認められる。比較例4は、400°C近傍に第1相に対応するT<sub>c</sub>を確認することができる。加えて、450°Cにおいて室温の20%に相当する磁化を有している。これは、比較例4の組成物に、T<sub>c</sub>が450°C以上の磁性相が存在していることを示している。測定温度を上昇していくと770°C近傍で磁化が失われることから、第2相の存在を確認することができる。この結果及びX線回折の結果から、この第2相はα-Feであると認められる。

### 【0028】

(第2実施例)

第1実施例と同様にして表2に示す組成物を得た。この組成物について、第1実施例と同様に飽和磁化(σ<sub>s</sub>)及び異方性磁界(H<sub>A</sub>)の測定を行うとともに、構成する相の同定を行った。その結果を表2に併せて示す。

### 【0029】

【表2】

	T <sub>i</sub> (y)	Fe+Ti (x)	Si (z)	N (v)	σ <sub>s</sub> [emu/g]	H <sub>A</sub> [kOe]	Fe+Ti+Si (x+z)	c/a	相構成
実施例9	8.2	10.1	2.0	1.6	121.6	57.4	12.1	0.562	単相
実施例10	8.1	10.5	1.9	1.5	124.8	59.0	12.4	0.562	
実施例11	8.1	10.9	1.9	1.5	127.4	58.6	12.8	0.562	
実施例12	8.0	12.2	2.0	1.4	135.9	58.9	14.2	0.561	
実施例13	8.2	12.5	2.0	1.5	138.2	58.4	14.5	0.561	
比較例5	8.3	12.7	2.0	1.6	137.8	45.8	14.7	-	α-Fe 析出

### 【0030】

表2に示すように、Fe+Ti量(x)、つまりRに対するFe+Tiの比が10～12.5の範囲にある実施例9～13は、120あるいは130emu/g以上の飽和磁化(σ<sub>s</sub>)及び55kOe以上の異方性磁界(H<sub>A</sub>)という高い磁気特性を得ている。しかも、実施例9～13による組成物は、正方晶化合物の単相組織である。これに対して、Rに対するFe+Tiの比が12.7の比較例5は、正方晶化合物の他にα-Feの析出が確認される。また、実施例9～13において、Rに対するFe+Tiの比が小さくなると、組織は単相であるものの、飽和磁化(σ<sub>s</sub>)及び異方性磁界(H<sub>A</sub>)がともに低下する。この傾向から、

Rに対するFe+Tiの比は、10以上とすることが望ましい。

### 【0031】

#### 【発明の効果】

以上説明したように、本発明によれば、異方的に結晶格子を収縮させるSiと等方的に結晶格子を膨張させるNを侵入元素として存在させ、かつRとTとの比が12近傍である金属間化合物により、飽和磁化及び異方性磁界とともに高い単相組織の硬質磁性組成物を得ることができる。

#### 【図面の簡単な説明】

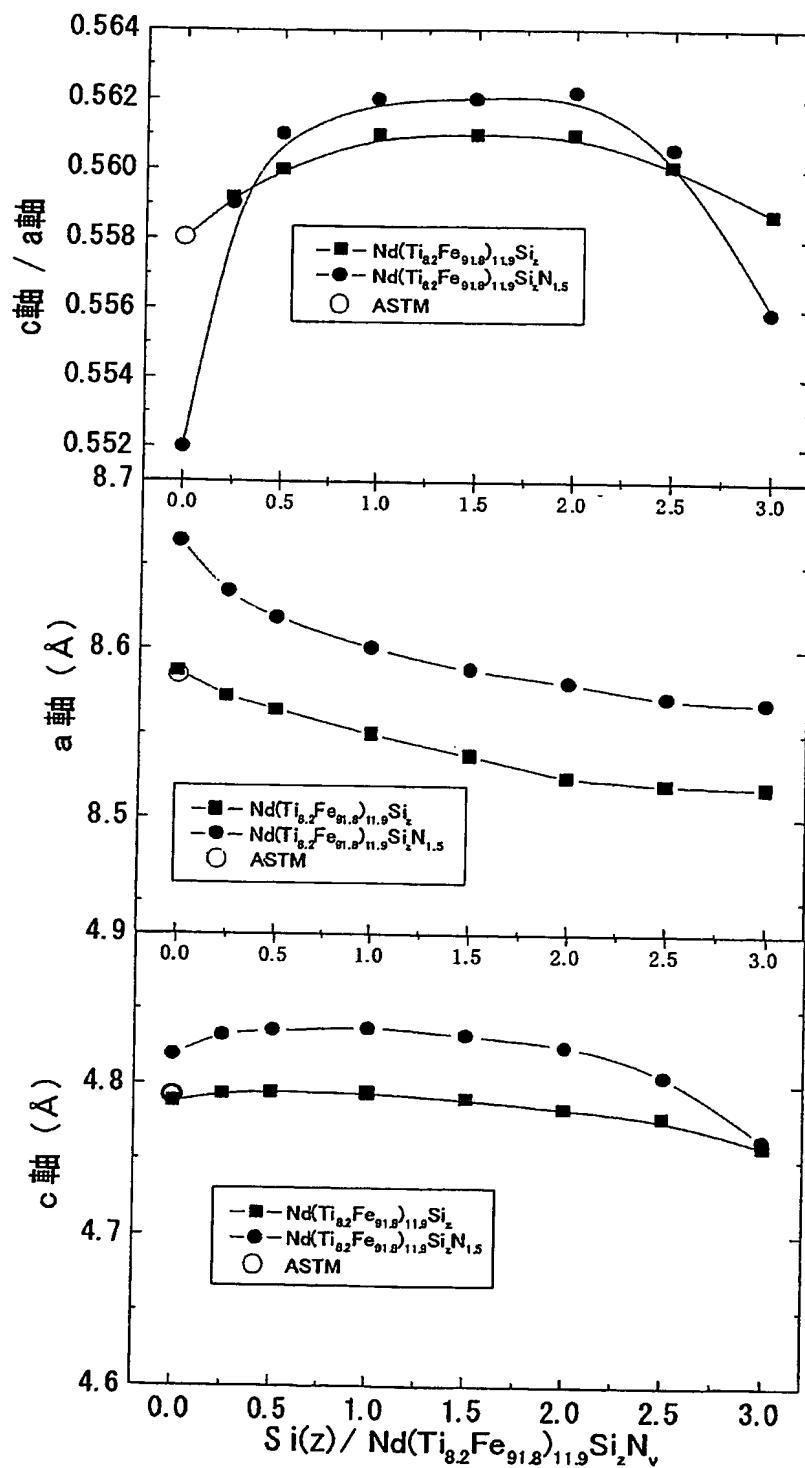
【図1】 Nd (Ti<sub>8.2</sub>Fe<sub>91.8</sub>)<sub>11.9</sub>Si<sub>z</sub>及びNd (Ti<sub>8.2</sub>Fe<sub>91.8</sub>)<sub>11.9</sub>Si<sub>z</sub>N<sub>1.5</sub>の組成を有する硬質磁性組成物における格子定数(c軸、a軸及びc軸/a軸)とSi量(z)の関係を示すグラフである。

【図2】 本発明の実施例及び比較例で得られた試料の熱磁気曲線である。

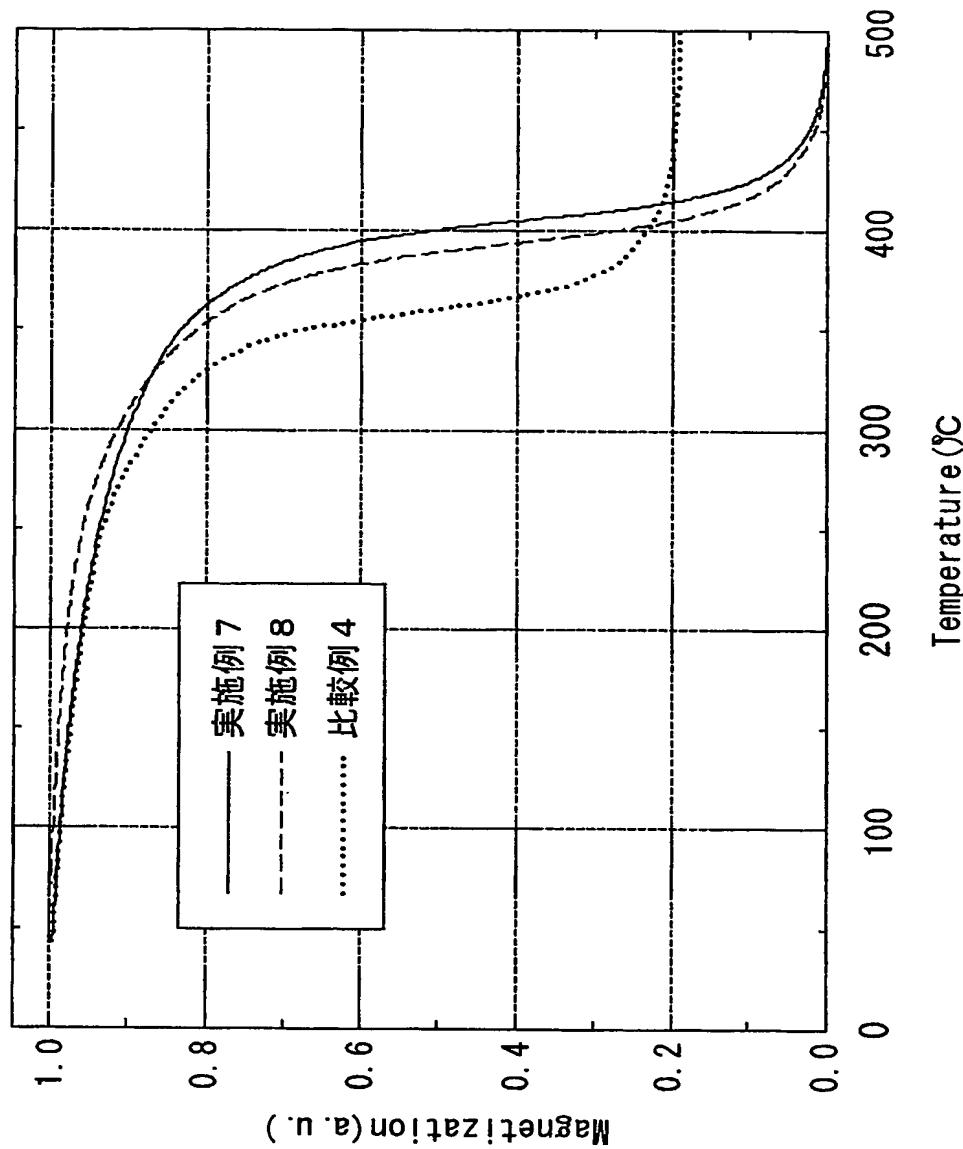
【書類名】

図面

【図1】



【図2】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 高温かつ長時間の熱処理等を施すことなく高い磁化と異方性を有する硬質磁性組成物を提供する。

【解決手段】 RとT (RはYを含む希土類元素の1種又は2種以上、TはFeおよびTiを必須とする遷移金属元素) のモル比が1:12近傍である金属間化合物の単相組織からなり、Si及びA (AはN及びCの1種又は2種) が侵入型元素として金属間化合物の結晶格子間に存在する硬質磁気組成物。金属間化合物における結晶格子のc軸の格子定数およびa軸の格子定数の比をc1/a1とし、ThMn<sub>12</sub>型化合物における結晶格子のc軸の格子定数およびa軸の格子定数の比をc2/a2すると、c1/a1 > c2/a2となる。

【選択図】 図1

特願 2003-026077

## 出願人履歴情報

識別番号

[00000306.7]

1. 変更年月日 1990年 8月30日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都中央区日本橋1丁目13番1号  
氏 名 ティーディーケイ株式会社

2. 変更年月日 2003年 6月27日

[変更理由] 名称変更

住 所 東京都中央区日本橋1丁目13番1号  
氏 名 TDK株式会社